

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number 08-007897
(43)Date of publication of application : 12.01.1996

(51)Int.CI.

H01M 4/86
H01M 4/88
H01M 8/02

(21)Application number : 06-138575
(22)Date of filing : 21.06.1994

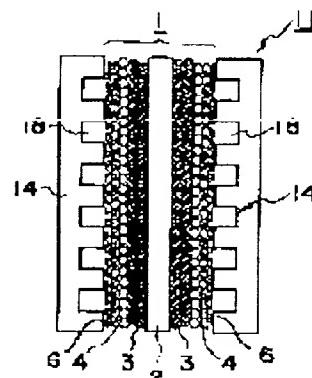
(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP
(72)Inventor : MIZUNO SEIJI

(54) FUEL CELL JUNCTION BODY AND MANUFACTURE THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a fuel cell junction body capable of enhancing gas diffusion capability, making exhaust water control of excess water easy, and preventing cell performance drop caused by concentration polarization.

CONSTITUTION: A junction body 1 of a fuel cell comprises an electrolyte film 2, a catalytic reaction layer 3 whose main component is carbon particles on which catalysts are carried, and a gas diffusion layer 4 made of carbon particles and water repellent resin, formed by sticking carbon short fibers at least on the surface on the opposite side to the catalytic reaction layer 3 in the state intertwined with the carbon particles. In the junction body 1, since the conductive carbon fibers intertwined each other cover the surface of the gas diffusion layer 4, an electrode can be made thin with conductivity with a separator (current collector) 14 ensured, strength of the gas diffusion layer 4 ensured, the catalytic reaction layer 3 protected without use of an electrode substrate such as carbon cloth and carbon paper. Therefore, gas diffusion capability and excess water exhausting capability are enhanced and high rate performance is improved.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 11.01.2001
[Date of sending the examiner's decision of rejection]
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]
[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C): 1998,2000 Japanese Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-7897

(43)公開日 平成8年(1996)1月12日

(51)Int.Cl.⁶

識別記号 庁内整理番号

F I

技術表示箇所

H 01 M 4/86
4/88
8/02

Z
C
E 9444-4K

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 5 頁)

(21)出願番号 特願平6-138575

(22)出願日 平成6年(1994)6月21日

(71)出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72)発明者 水野 誠司

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動
車株式会社内

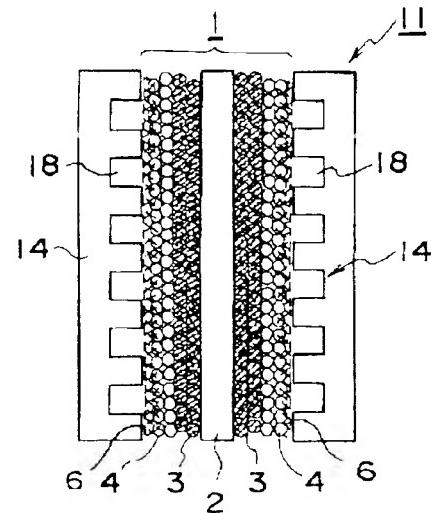
(74)代理人 弁理士 吉田 研二 (外2名)

(54)【発明の名称】 燃料電池の接合体およびその製造方法

(57)【要約】

【目的】 ガス拡散性が向上し、余剰水の排水管理が容易となり、濃度分極による電池性能低下を防止できる燃料電池の接合体を得る。

【構成】 燃料電池の接合体1を、電解質膜2と、触媒を担持した炭素粒子を中心とする触媒反応層3と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなるガス拡散層4上、で構成する。この接合体1においては、導電体の炭素繊維が絡み付いた状態でガス拡散層4の表面を覆うこととなるため、カーボンクロロフやカーボンヘーハー等の電極基材を用いることなく、セバレータ(集電体)1-4との導電性的確保、ガス拡散層4の強度の確保及び触媒反応層3の保護を行ないながら電極を薄くできるため、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性が改善される。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 電解質と、
触媒を拘束した炭素粒子を主体とする触媒層と、
炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層
と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素
短纖維を付着させたる抵散層と、
から構成される燃料電池の接合体。

【請求項2】 炭素の短纖維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸する工程と、
該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを、触媒を拘束
した炭素粒子を主体とする触媒層を介してホットプレス
にて一体化する工程と、
前記基材を電解質から剥がす工程と、
からなる燃料電池の接合体製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は燃料電池の接合体および
その製造方法、特に電解質膜、触媒反応層、ガス拡散層
からなる接合体のガス拡散層の改良に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 燃料電池は、原料ガスの反応エネルギーを直接的に電気エネルギーに変換する電池であり、図4、5に示されるような単セルを単位として発電を行ふ。この単セル1上は、接合体1-2がセパレータ1-4に拘束されており、接合体1-2は、電解質膜1-5と、この電解質膜の両面に形成される触媒反応層1-6と、この触媒反応層1-6上に被覆されるガス拡散電極1-7からなる。ここで、電解質膜1-5は燃料電池の半導
伝導体として機能するものであり、取扱いの利便等から固体高分子のものが一般的に使用されている。

【0003】 このような燃料電池において、セパレータ1-4の挙持面に設けられているガス流路1-8に燃料ガス(例えば水素)及び酸化ガス(例えば酸素)を吹き込む通孔1-9と、これとガス拡散電極1-7を介して触媒反応層1-6に供給される。この内、水素ガスはアノード側触媒反応層においてプロトトンを生じ、外部回路に電子を放出する。生成したプロトトンは、固体高分子電解質膜1-5を通じて酸素側に移動し、酸素側の触媒反応層(カーボン側触媒反応層)において酸素と反応して水を生じる。

【0004】 このような触媒反応層とガス流路1-8との間に嵌められた拡散電極1-7が配されており、該ガス流路から触媒反応層への燃料ガス又は反応ガスを良好に拡散させると共に集電体1-4間上の電子の往復を行わせる機能、及び触媒反応層を集電体上に摩擦による剥離などのから保護する機能を有している。そのようなガス拡散電極の構成としては、主にカーボンペーパー、カーボンコットン等が用いられており(例えば、特開昭60-211477号公報)。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、電極としてカーボンペーパーやカーボンペーパー等を用いると、それらの厚みに起因してガス流路から触媒までの距離が長くなり、ガスの拡散性の悪化、余剰水の排出性の悪化等が生じ、特に高負荷領域での出力には低下が生じる。また、単に電極を配置しないようにすると、導電性が悪化する(通常、触媒反応層には撥水性有する目的で非導電性のアッセイ樹脂が添加されている為)だけではなく、接触抵抗のバッフル及び摩耗等により触媒層が損傷を受ける等の弊がある。

【0006】 本発明は上記のような従来の問題点を解決することを課題にされたもので、ガス拡散性が向上し、余剰水の排水管理が容易となる、濃度分極による電池性能低下を防止できる燃料電池の接合体を得ることを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】 以上のような課題を解決するためには、本願の請求項1記載の発明に係る燃料電池の接合体は、電解質と、触媒を拘束した炭素粒子を主体とする触媒層と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短纖維を付着させたる抵散層と、から構成されることを特徴とする。

【0008】 また、請求項2記載の発明に係る燃料電池の接合体製造方法は、炭素の短纖維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸する工程と、該基材の塗布又は含浸した面上電解質とを、触媒を拘束した炭素粒子を主体とする触媒層を介してホットプレスにて一体化する工程と、前記基材を電解質から剥がす工程と、からなることを特徴とする。

【0009】 なお、上記電解質として固体高分子電解質膜を用いた場合には、上記触媒層に所定の電解質溶液を含ませる必要がある。

【0010】

【作用】 以上のようにして構成される請求項1記載の発明に係る燃料電池の接合体は、炭素粒子(カーボンペーパー)と撥水性樹脂粒子(アッセイ)からなる抵散層に導電体である炭素纖維が絡み合って直角に表面を覆っているため、カーボンペーパーやカーボンペーパー等の電極基材を用いることなく、該層の強度の確保、触媒層の保護に加えると同時に、集電体上の導電性を確保するために電極を薄くするため、ガスの拡散性及び余剰水の排水性を向上し、高負荷時の出力特性を改善できる。

【0011】 請求項2記載の発明における燃料電池の接合体製造方法は、炭素の短纖維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸させた後、該基材の塗布又は含浸した面上電解質とを触媒層を介してホットプレスにて一体化し、前記基材を電解質から剥がすようにして上にされ、触媒を拘束した炭素粒子を主体とする部分及び厚さ抵散電極としての必要最小限の機能部面を残

した状態で、基材の全分野を容易に除去することができる。このため、請求項2記載の製造方法によれば、前記請求項1の接合体を簡単な作業手程によって安価に製造することができる。

【0012】

【実施例】以下、本発明の実施例を下面に基いて説明する。図1は本発明の接合体の構成を示す概要図、図2はその拡大図である。なお、従来例と同一の構成要素には同一番号を付し、その説明を省略する。尚、本実施例は電解質膜に隣りオイシ支換膜（例えはナフ・オシ膜・米田デコ社の商品名）を用いた、所謂、固体高分子型燃料電池を本発明を用いた場合にて説明する。

【0013】本実施例に係る接合体1は、電解質膜2と、この電解質膜2の両面に被覆される触媒反応層3と、この触媒反応層3上に被覆されるガス拡散層4及び6と、からなる。そして、触媒反応層3とガス拡散層4及び6上で電極を構成している。なお、従来例と同様に、電極基材（炭素）で構成された左ハーフセル4は集電体の機能も兼ねる。

【0014】上記触媒反応層3は電極反応の触媒が担持された炭素微粒子と電解質膜の溶液とを混合して形成されて成り、ガス拡散層4及び6は炭素系樹脂と炭素粒子とを混合した撥水層5を主体として、該炭素粒子に絡みあい少なくとも該撥水層5から集電体側に露出した炭素短纖維群6からなる。尚、本実施例においては、炭素短纖維群が撥水層5一部の炭素粒子上に絡み合った状態にしたが、導電性及び保護機能の面からは撥水層5の厚さ方向における交絡み合ってても良いし、更に触媒反応層3まで達するよりた絡み具合とした方が良好である。このため、カーボンクリークやカーボンマッパー等の電極基材を用いた場合と比べて電極を薄くできるのももちろんのこと、セパレータ（集電体）上にガス拡散層4を用いた場合と比較してガスの拡散性及び全剥離の排気性を向上させることが可能で、高負荷時の出力特性を改善できる。

【0015】次に上記の構成がなる本発明の接合体製造方法を図2に基いて具体的に説明する。まず、電極基材となるカーボンクリーク（カーボン短纖維を継ぎた糸）を半纖維（直径約0.1mm）にして、アーリンガ（5.0×1.1mm²）を分散させ、撥水性樹脂を施したカーボンクリークを塗り込み、ガス拡散層5を形成する。次に、このガス拡散層5の上部に、2.0mg/cm²の量の陽子オシ支換樹脂溶液（濃度約5wt%、東洋リサーチ社）を網形で1ml、1.0ml、1.0ml、1.0mlの量を詰め、次にカーボンクリーク（炭素繊維）を支換膜の電解質膜2の両面に上記触媒反応層3が計量解質膜側になるように挟み、120°C、10.0kg/cm²でm²/min/m²により圧

着する。そして、最後に上記カーボンクリークを剥がして接合体1とする。今回は基材として前述したカーボンクリークを用いたが、カーボンマッパーを用いても良い。また生産性を考慮しなければ、表面に剥離可能な性質の炭素短纖維を付着させ、吸水性（カーボンクリーク及び撥水樹脂からなる溶液が若干浸透する性質）を有した基板であれば特に限定されることなく用いることは可能である。

【0016】この剥がし時に於て、カーボンクリークはホットプレスにより、カーボン短纖維が切れ、そのカーボン短纖維の一部が触媒反応層側に絡み合って付着、脱落する。

【0017】なお、触媒反応層3は電解質膜2のアシカーニ効果及びオシ支換樹脂による結合力で付着し、ガス拡散層はテフロンにより結合してあり、カーボンクリークとの界面で剥がすことができる。尚、本実施例においては、ホットプレス時にカーボンクリークの両面によって触媒反応層が押圧される為、触媒反応層上の解質膜が多元的に構成され反応面積が増大し、好適である。このようにして製造された接合体は、撥水層5炭素短纖維群の厚みが0.1mmであり、カーボンクリークを剥がす時に構成した時の厚さの1/3～1/4以下である。また、カーボンクリークを剥がした状態で表面に露出する炭素短纖維群の突出量は数十ミクロメートル程度である。また、該炭素短纖維群のセパレータに押しつけられた状態での占積面を覆う割合は50%程度であるが、それ以上でも問題ない。

【0018】次に、上記のように製造した接合体1をガス流路付きのカーボンクリークに接着、扶持して電池とし、電極面積144cm²、温度80℃にて特性評価を実施した。その結果、本発明の接合体1は、ガス拡散層を薄くした分、特に、ガスの放散性が向上し、濃度分極の低減が図れ、内部抵抗も1.5mΩで図3に示す曲線より特性が優れ、面積144cm²で従来のセパレータ、セパレータを有し、内部抵抗1.8mΩで図3に示す曲線より特性が得られる接合体1に比べ高性能化が図れた。

【0019】ここで、電解質膜を寸法しない限り、之により門面を形成し、その上に触媒担持カーボンを接着する方法（特開平1-1162906号公報）を採用するが、電子導電性を良くするため等の理由により撥水性の樹脂をガス拡散層に混合あるいは被覆する必要があり、結果的に集電体との接触抵抗が悪くなっていたが、本発明においてはこのような事態が生じない。また、カーボンクリーク等を用いない場合には、集電体との摩擦や電解質膜の膨張、収縮等により触媒反応層が脱落し、耐久性に劣るというような問題があつたが、本実施例では、ガス拡散層に導電体の纖維（炭素纖維）を絡み付けてその表面を覆っているため、このような問題が生じない。

【0020】

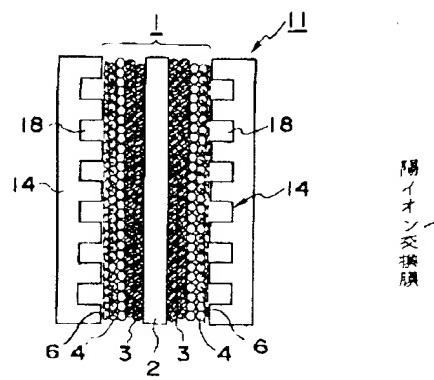
【発明の効果】以上のように、本発明に係る燃料電池の

接合体によれば、拡散層に導電体の繊維（炭素繊維）が絡み付いてその表面を覆っているため、拡散層の強度を確保し、触媒層の保護及び集電体との導電性を確保しつつ電極を薄くできる。これにより、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性を改善できる。

【0021】また、炭素の短纖維からなる基材の撥水性樹脂を塗布又は含浸した面と電解質とを触媒層を介してホットプレスにて一体化した後、前記基材を電解質から剥がすようにしたことにより、触媒を担持した炭素粒子を主体とする部分及び拡散層として機能する部分を残しながら、炭素の短纖維からなる基材の余分の部分を除去することができる。このため、拡散層の強度の確保、触媒層の保護及び集電体との導電性の確保をしつつ、ガス流路から触媒までの距離が短縮できることとなり、本発明に係る燃料電池の接合体を簡単な作業工程によって安価に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】



【図1】本発明の接合体を適用した燃料電池の単セルの構成を示す概要図である。

【図2】本発明の接合体の一部の拡大図である。

【図3】図1の単セルを適用した電池と従来の電池との特性比較図である。

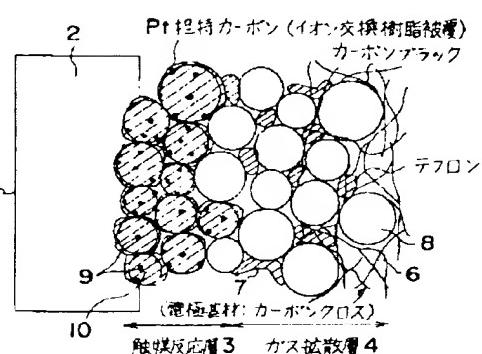
【図4】従来の燃料電池の単セルの概要を示す斜視図である。

【図5】従来の燃料電池の単セルの概要を示す側面図である。

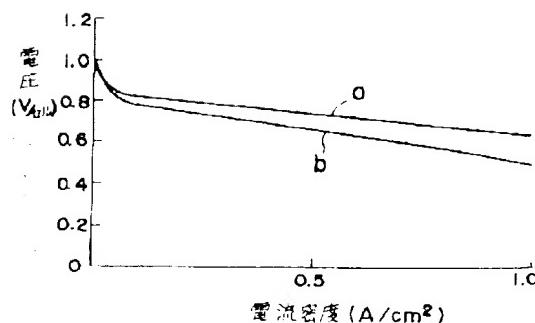
【符号の説明】

- 1. 接合体
- 2. 電解質膜
- 3. 触媒反応層
- 4. ガス拡散層
- 6. 短纖維（ガス拡散層）
- 8. カーボンブラック
- 10. カーボン

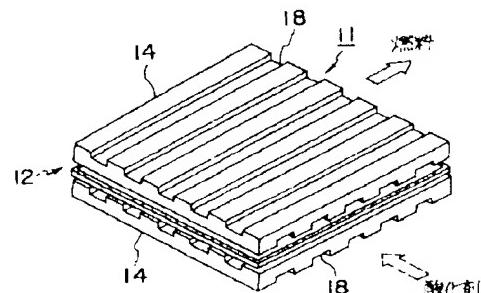
【図2】



【図3】



【図4】



【図5】

